

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年 11 月 20 日 (20.11.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/095554 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 63/00, C08G 59/68, C08K 3/22, 3/26, C09J 163/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/05691
- (22) 国際出願日: 2003 年 5 月 7 日 (07.05.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2002-132883 2002 年 5 月 8 日 (08.05.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ヘンケル ロックタイトコーポレーション (HENKEL LOC-TITE CORPORATION) [US/US]; 06067 コネチカット州 ロッキー ヒルトラウトブルッククロッシング 1001 CT (US).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 顔 玉愛 (GAN, Yoke Ai) [MY/JP]; 〒234-0054 神奈川県横浜市港南区 港南台 9-1 9-1-2 3 6 Kanagawa (JP). 寺田 和代 (TERADA, Kazuyo) [JP/JP]; 〒236-0031 神奈川県横浜市金沢区 六浦 1-9-4 8-2 0 2 Kanagawa (JP). 陳 純福 (CHEN, Chunfu) [CN/JP]; 〒230-0078 神奈川県横浜市鶴見区 岸谷 1-3-1 6-4 0 2 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 宮崎 昭夫, 外 (MIYAZAKI, Teruo et al.); 〒107-0052 東京都港区赤坂 1 丁目 9 番 2 0 号 第 1 6 興和ビル 8 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PHOTO-INDUCED CATION CURABLE EPOXY RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物

(57) Abstract: A photo-induced cation curable epoxy resin composition which comprises (a) an epoxy resin component containing an alicyclic epoxy resin and an epoxy resin having an aromatic ring, (b) a photo-cationic initiator and (c) a filler selected from the group consisting of the oxides, hydroxides and carbonates containing a 2 group element of the long periodic table of elements. The composition can be used as an adhesive exhibiting high adhesiveness toward a glass, particular an alkaline glass, or a metal.

(57) 要約: 光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物は、(a) 脂環式エポキシ樹脂と、芳香環を有するエポキシ樹脂とを含有するエポキシ樹脂成分、(b) 光カチオン開始剤成分、および(c) 元素の長周期表中の 2 族元素を含む酸化物、水酸化物および炭酸塩からなる群より選ばれる充填剤を含有する。この組成物は、ガラス、特にアルカリガラス、または金属に対して、高い接着力を示す接着剤として使用できる。



WO 03/095554 A1

明 細 書

光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物

技術分野

本発明は、光硬化樹脂に関し、詳しくは光照射の照射によって、カチオン重合により硬化し得るエポキシ樹脂組成物に関する。

背景技術

光、特にUV領域の光の照射によってエポキシ樹脂をカチオン重合させて硬化する光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物は、熱硬化型とほぼ同等の硬化物性が得られると共に、ラジカルUV硬化型に比べて酸素阻害を受けないこと、ラジカルUV硬化型に比べて収縮率が小さいこと等の利点があり、液晶ディスプレイ用途、デジタルビデオディスクの貼り合わせ用途等が知られている。

この樹脂組成物は光カチオン開始剤を含む。光カチオン開始剤は、通常、塩の形態で表され、 A^+B^- で表したときにそのアニオン B^- の種類により、樹脂組成物の硬化速度が概ね決まることが知られている。例えば、トリアリールスルホニウムヘキサフルオロアンチモネートのような SbF_6^- を有する化合物、テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートー {メチルー4-フェニル（メチルー1-エチル）-4-フェニル} ヨードニウム塩のような $B(アリール)_4^-$ を有する化合物を光カチオン開始剤として用いた樹脂組成物は、硬化速度が速いことが知られている。

しかし、本発明者の実験によれば、これらの硬化速度の速い開始剤を用いたエポキシ樹脂組成物は、例えば、ホウケイ酸ガラスのようなノンアルカリガラスに対して、高い接着強度を示すが、ソーダライムガラスのようなアルカリガラスおよびステンレススチールのような金属に対しては、十分な接着強度を示さなかった。

一方、例えば、トリアリールスルホニウムヘキサフルオロホスフェートのような PF_6^- を有する化合物を光カチオン開始剤として用いた樹脂組成物は、硬化速度が遅いことが知られている。本発明者の実験では、このような硬化の遅いタイ

プの光カチオン開始剤を、硬化の速いタイプの開始剤に加えて用いると、アルカリガラスまたは金属の対する着の際の接着強度がある程度向上したが、まだ十分な接着強度ではなかった。また、用途に応じて必要な硬化速度を得るためには、硬化の速いタイプの開始剤を必ず併用しなければならない場合があり、接着強度の改善が強く望まれていた。

また、特開平6-73159号公報には、光カチオン硬化型エポキシ樹脂にタルク、コージェライトを添加することが記載されている。しかしながら、この公報では、フッ素化されたエポキシ樹脂を用いることが必須であり、またフッ素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂に添加する充填剤としては、コージェライト粉末、タルク粉末、シリカ粉末が挙げられている。そして、ガラスに対する接着試験では、アルカリを含まないBK-7ガラスに対する接着性を試験しているだけである。つまり、この公報は、アルカリガラス接着用途、またはステンレススチールなどの金属接着用途の十分な接着強度の得られる光カチオン硬化型樹脂は全く開示していない。

発明の開示

本発明は、ガラス、特にナトリウムを含むアルカリガラス、または金属に対して、高い接着力を示す接着剤として使用できる光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。特に、光カチオン開始剤として、 A^+B^- で表したときのアニオン B^- が、 SbF_6^- または $B(アリール)_4^-$ である塩を用いたときでも十分な硬化速度共に、アルカリガラスまたは金属に対して、高い接着力を示す接着剤として使用できる光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物を提供することを目的とする。

本発明は、(a)脂環式エポキシ樹脂と、芳香環を有するエポキシ樹脂とを含有するエポキシ樹脂成分、(b)光カチオン開始剤成分、および(c)元素の長周期表中の2族元素を含む酸化物、水酸化物および炭酸塩からなる群より選ばれる充填剤を含有する光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物に関する。

本発明では、2族元素を含む無機化合物、特に酸化物、水酸化物および炭酸塩

を充填剤として含有させることにより、意外なことにアルカリガラスまたは金属に対する接着強度が著しく向上する。従って、本発明の光カチオン硬化型エポキシ樹脂は、少なくとも被接着物の一方が、アルカリガラスまたは金属である場合の接着剤として極めて有用である。

また、接着強度が向上する理由については不明であるが、本発明者は、充填剤に用いられる材料には、適度なアルカリ性を有するものが好ましいと考えている。

図面の簡単な説明

図1および図2は、ガラス／ガラス引張り接着強度測定方法、およびステンレススチール／アルカリガラスの引張り接着強度測定方法を説明する図である。

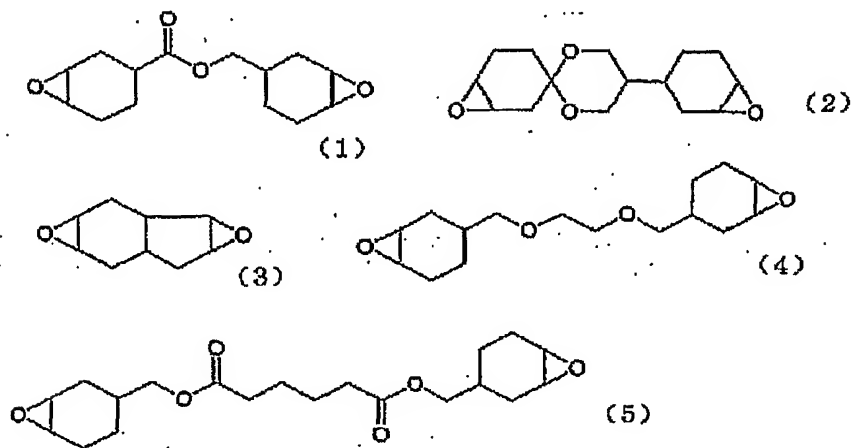
ここで、1および2はガラス、3はソーダライムガラス、4はステンレススチールピン、5は樹脂組成物（接着剤）を示す。

発明を実施するための最良の形態

本発明の光カチオン樹脂組成物は、前述のとおり、（a）脂環式エポキシ樹脂と、芳香環を有するエポキシ樹脂とを含有するエポキシ樹脂成分、（b）光カチオン開始剤成分、および（c）元素の長周期表中の2族元素を含む酸化物、水酸化物および炭酸塩からなる群より選ばれる充填剤を少なくとも含む。

エポキシ樹脂成分は、脂環式エポキシ樹脂と、芳香環を有するエポキシ樹脂とを含有する。エポキシ樹脂成分中に含まれる各エポキシ樹脂として、フッ素化されたエポキシ樹脂を用いることを妨げるものではないが、特にフッ素化樹脂を用いる必要もない。本発明のある態様においては、フッ素化されていないエポキシ樹脂を主成分（エポキシ樹脂成分中の60重量%以上、好ましくは80重量%以上）として用いる。特に、芳香環を有するエポキシ樹脂に関してフッ素化されていない樹脂を60重量%以上、さらに80重量%以上とすることも好ましい。最も好ましい態様では、各エポキシ樹脂は、全てフッ素化されていない樹脂である。

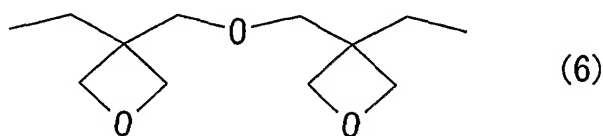
脂環式エポキシ樹脂は、分子内にシクロヘキセンオキサイド構造およびシクロペンテンオキサイド構造のような環ひずみのあるエポキシ基を有するものであって、特にこのようなエポキシ基を1分子内に2個以上有するものが好ましい。脂環式エポキシ樹脂の代表的な例として、次の式(1)～(5)で示される化合物を挙げることができる。



芳香環を有するエポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂およびビスフェノールS型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂およびクレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂；ジャパンエポキシレジン(株)製商品名YX4000といったビフェニル型エポキシ樹脂等を挙げるすることができる。芳香環を有するエポキシ樹脂は、通常分子内に1個以上のエポキシ基を有し、エポキシ当量は、適宜選ぶことができる。

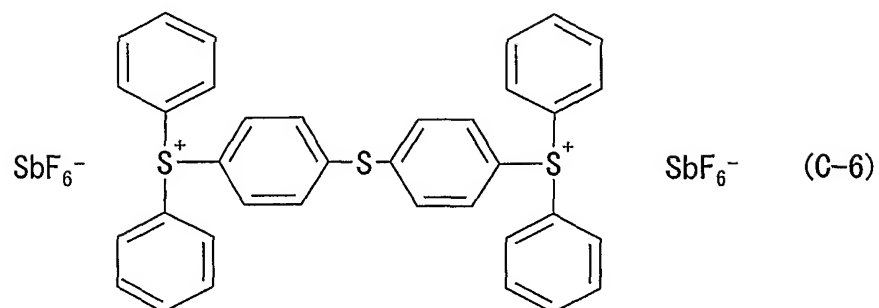
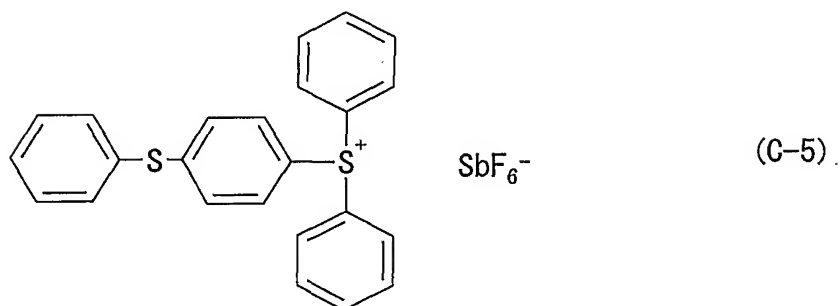
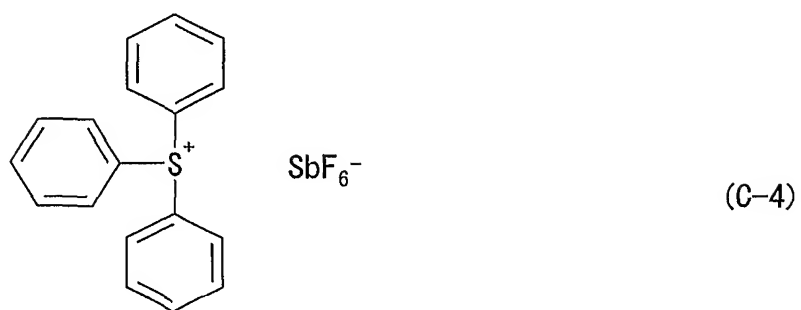
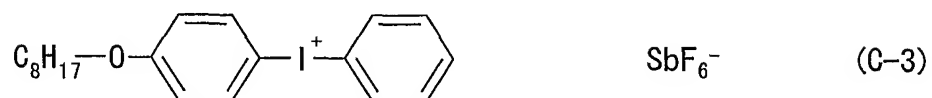
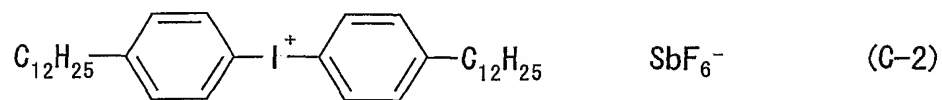
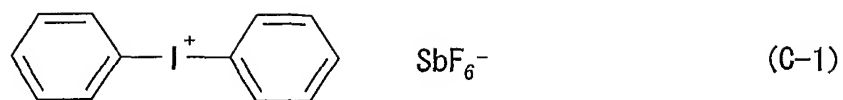
また、エポキシ樹脂成分中には、その他に公知の希釈剤が含まれていてもよく、エポキシ基を有する化合物、ビニルエーテル類、オキセタン化合物、ポリオール類等を適宜使用することができる。具体的には、シクロヘキサンジメタノールジグリシジルエーテル(cyclohexanedimethanol diglycidyl ether)、ブチルグリシジルエーテル、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル等の脂肪族アルキルモノまたはジグリシジルエーテル；グリシジルメ

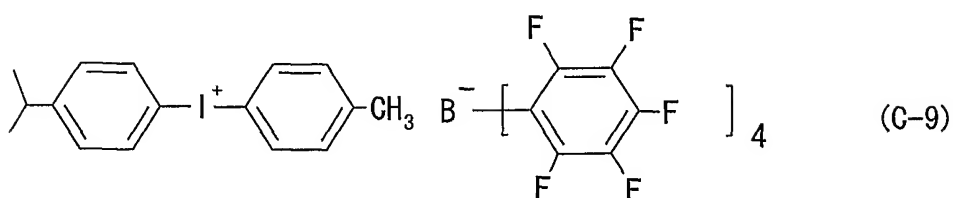
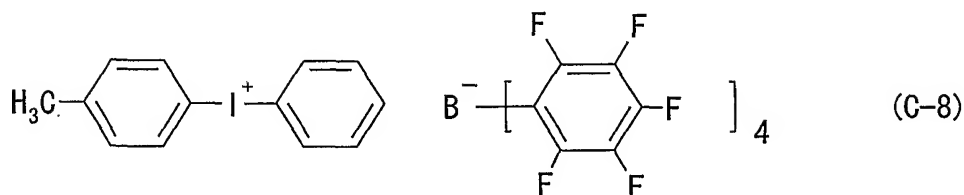
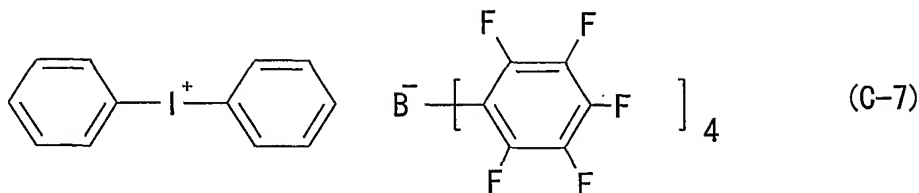
タクリレート、3級カルボン酸グリシジルエステル等のアルキルグリシジルエステル；スチレンオキサイド；フェニルグリシジルエーテル、クレジルグリシジルエーテル、p-ス-ブチルフェニルグリシジルエーテル、ノニルフェニルグリシジルエーテル等の芳香族アルキルモノグリシジルエーテル；テトラヒドロフルフリルアルコールグリシジルエーテル；シクロヘキサンジメタノールジビニルエーテル(cyclohexanedimethanol divinyl ether)、トリエチレングリコールジビニルエーテル(triethleneglycol divinyl ether)、ヒドロキシブチルビニルエーテル(hydroxybutyl vinyl ether)等のモノまたは多官能ビニルエーテル類；一般式 $H-(OCH_2CH_2)_n-OH$ で表されるポリオール類（但し、 n は1以上の整数で、通常2～20程度である。）；下記式(6)で表されるオキセタン化合物を挙げることができる。



脂環式エポキシ樹脂、芳香環を有するエポキシ樹脂および希釈剤を合計したエポキシ樹脂成分全体に対して、脂環式エポキシ樹脂の含有割合は1～80重量%、好ましくは5～40重量%、さらに好ましくは10～30重量%である。また希釈剤は任意成分であり、その含有割合は、エポキシ樹脂成分全体の0～40重量%、好ましくは0～20重量%である。

光カチオン開始剤は、 A^+B^- で表される塩である。本発明では、アニオン B^- が、 SbF_6^- 、または $B(C_6F_5)_4^-$ のような B (アリール) $_4^-$ イオンである開始剤（以下、第1の開始剤ともいう。）を少なくとも含む。 B (アリール) $_4^-$ としては、 $B(C_6F_5)_4^-$ の他に、例えば $B(C_6F_4OCF_3)_4^-$ 、 $B(C_6F_4CF_3)_4^-$ 等を挙げることができる。カチオン A^+ は、芳香族ヨードニウムイオン、芳香族スルホニウムイオンが好ましい。具体的には、例えば下記式で表される化合物を挙げることができる。





アニオン B^- が、 SbF_6^- 、または $\text{B}(\text{アリール})_4^-$ イオンである開始剤（即ち、第1の開始剤）は、硬化速度が速い。しかし、後述する「本発明で定義された充填剤」を含まない組成物では、ノンアルカリガラスに対する接着性は良いが、アルカリガラス、金属等に対する接着性が著しく低下する。従って、本発明は、第1の開始剤を含む場合に、非常に大きな効果を奏するものである。

これらの第1の開始剤に加えて、接着性をより向上させるためには、アニオン B^- が SbF_6^- および $\text{B}(\text{アリール})_4^-$ イオン以外のアニオンを有する第2の開始剤を含んでいてもよい。この第2の開始剤は任意成分であって、第1の開始剤に比べて硬化速度は遅いが接着強度が上がる利点があり、通常は第1の開始剤と合わせて用いることができる。第2の開始剤のアニオン B^- としては、 PF_6^- 、 AsF_6^- 、 BF_4^- 等を挙げることができる。具体的な化合物としては、前述の化合物で SbF_6^- を PF_6^- 、 AsF_6^- 、 BF_4^- 等に置き換えた塩を挙げることができる。

第2の開始剤の配合割合は、用途、求められる接着強度、硬化速度等を勘案して決められるが、一般的には、（第2の開始剤／第1の開始剤）の重量比が、0／1～10／1程度の比となる範囲で添加される。

光カチオン開始剤は、エポキシ樹脂成分100重量部に対して、例えば0.1重量部～10重量部、好ましくは0.5重量部～5重量部で添加することが好ましい。

また、必要に応じて、チオキサントン等の光増感剤を添加することも好ましい。

本発明で用いられる充填剤は、元素の長周期表中で2族に含まれる元素を含み、酸化物、水酸化物および炭酸塩からなる群より選ばれるものが好ましい。元素の長周期表中の2族は、それぞれ旧2A族に属し、マグネシウム、カルシウムおよびバリウムが好ましい。2族元素と共にアルミニウムおよびシリコン等の他の元素との複合酸化物、複合水酸化物の形態（形式上、複合酸化物または複合水酸化物として表現できるものを含む。）であってもよい。以下、ここで定義された充填剤を、「本発明で定義された充填剤」というものとする。

例えば、マグネシウムの場合は、 MgO 、 $Mg(OH)_2$ 、タルク (talc: $2MgO \cdot SiO_2(OH)$ magnesium silicate hydroxide)、コージェライト (cordierite: $2MgO \cdot 2Al_2O_3$)、メタケイ酸マグネシウム（マグネシウムメタシリケート）、オルトケイ酸マグネシウム等を挙げることができる。これらの中でも、特にタルクおよびコージェライトが好ましい。

カルシウムおよびバリウムの場合は、炭酸カルシウム、および炭酸バリウム等の炭酸塩が好ましい。

本発明で定義された充填剤の粒径は、通常0.5～15 μm 、好ましくは、5 μm 以下である。

本発明で定義された充填剤は、組成物中に少しでも存在すればそれだけ接着強度が向上する。従って、その含有量は、エポキシ樹脂成分100重量部に対して、0より多ければよく、好ましくは1重量部以上、特に5重量以上、最も好ましくは10重量部以上である。また、含有量の上限は、取り扱い性、物性等を考慮して決められるが、通常300重量部以下、好ましくは200重量部以下、特に100重量部以下である。

また本発明では、必要に応じて、例えばシリカ、アルミナ等のその他の充填剤

を任意成分として含むことができる。一般には、本発明で定義された充填剤とその他の充填剤の合計が、エポキシ樹脂成分100重量部に対して、300重量部以下となるように配合する。

本発明の組成物は、さらに必要によりシランカップリング剤、着色剤、界面活性剤、保存安定剤、可塑剤、滑剤、消泡剤、レベリング剤等を含んでもよい。

例えば、シランカップリング剤としては、特に制限はないが、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -メタアクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメチルシラン、SH6062、SZ6030（以上、東レ・ダウ コーニング・シリコーン（株））、KBE903、KBM803（以上、信越シリコーン（株））などが挙げられる。

本発明の光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物は、接着対象の少なくとも1つがアルカリガラスまたは金属である用途の接着剤として、好ましく用いることができる。アルカリガラスとしては、代表的にはソーダライムガラスが挙げられ、その表面にITOまたは酸化スズ等の透明電極が形成されている場合にも、高い接着強度を示すことができる。また、接着対象としての金属は、特に制限はないが、例えばステンレススチール、鉄、銅等を挙げることができる。

実施例

表1に示す成分を混合して樹脂組成物を得た。実施例および比較例中、ビスフェノールA型エポキシ樹脂は日本化薬（株）製、RE-3105、脂環式エポキシ樹脂はビスー（3, 4-エポキシシクロヘキシル）アジペート（Union Carbide社UVR-6128）、シランカップリング剤には γ -グリシドキシプロピルトリメチルシランを用いた。

光カチオン開始剤として、表中、「速硬化開始剤」としては、式（C-9）で表される化合物〔テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート-〔メチルー4-フェニル（メチルー1-エチル）-4-フェニル〕ヨードニウム塩（
tetrakis(pentafluorophenyl)borate-{methyl-4-phenyl(methyl-1-

ethyl)-4-phenyl}iodonium salt)] を用い、「遅硬化開始剤」としては、式 (C-5) と式 (C-6) の混合物 (ユニオンカーバイド CYRACURE (TM) Photoinitiator UVI-6990) を用いた。

シリカは、比重 2.635、平均粒径 $1.5\ \mu\text{m}$ のものを用いた。

タルクは、比重 2.70、平均粒径 $5\sim 6\ \mu\text{m}$ のものを用いた。

また、各測定は、次のように行った。

<タックフリータイム>

各樹脂組成物をガラス板上に厚さ 1 mm に塗布し、表面から光を照射した。照射光源は、中圧水銀灯 (Eyegraphics Co. H015-L312) を用いて (以下の測定でも同じ。)、365 nm における光強度が $100\ \text{mW}/\text{cm}^2$ となるように調節した (UV メーター: ウシオ UIT101 @365nm で測定)。そして、樹脂組成物表面のべとつき (タック) がなくなるまでの光照射時間を「タック・フリー・タイム」とした。この時間が短いほど、表面のべたつきが早く無くなることを示し、好ましい。

<硬化深度体積>

表面から硬化している深さを調べるために、各樹脂組成物を直径 1.5 cm 深さ 1 cm のテフロン製円柱状型に入れ、365 nm における光強度 $100\ \text{mW}/\text{cm}^2$ にて 30 秒間光照射した後、型より取り出し、下部の未硬化物をふき取り、残った硬化樹脂の高さを「硬化深度体積 (cured through volume)」として比較した。この高さは、大きいほど表面から深く硬化が進行していることを示し、好ましい。

<接着強度>

ノンアルカリガラス/ノンアルカリガラスの引張り接着強度測定、およびアルカリガラス/アルカリガラスの引張り接着強度測定は、図 1 に示すように 2 枚の厚さ 1 mm、幅 15 mm、長さ 30 mm のガラス板 1、2 を間に樹脂組成物 (接着剤) を介してクロスに合わせ、365 nm における光強度 $100\ \text{mW}/\text{cm}^2$ にて 30 秒間光照射した後、 100°C で 1 時間ポストヒーティングを行って樹脂組成物を硬化させた後、図 1 の矢印の方向に 2 枚のガラスを引き剥がすように引っ張っ

て強度を測定した。

ノンアルカリガラスとしてはCorning 1737ガラスを用いて、アルカリガラスとしてはソーダライムガラスを用いた。

ステンレスピン／アルカリガラスの引張り接着強度測定は、図2に示すように、厚さ6mm、幅31mm、長さ38mmのソーダライムガラス3と直径12.7mm、長さ38mmのステンレススチールピン4との間に樹脂組成物（接着剤）5を塗布した後、上述のガラス同士の接着と同様に硬化させた後、ソーダライムガラス3を固定した状態で、ステンレススチールピンを矢印方向に引っ張って強度を測定した。

表1

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	実施例 1
ビスフェノール A 型エポキシ樹脂	22.80	30.00	27.00	43.17
脂環式エポキシ樹脂	15.19	23.38	11.34	8.71
シランカップリング剤	1.00	2.00	1.00	1.88
速硬化開始剤	1.00	0.60	0.15	0.19
遅硬化開始剤	—	1.00	0.50	0.47
チオキサントン	0.01	0.02	0.01	0.01
シリカ	60.00	43.00	60.00	26.80
タルク	—	—	—	18.77
合計:	100.00	100.00	100.00	100.00
タックフリータイム	<5s	<5s	<5s	<5s
硬化深度体積	>4.7mm	1.9mm	>1.9mm	1.4mm
接着強度：ノンアルカリガラス／ ノンアルカリガラス	NA	NA	NA	2.6N/mm ²
接着強度：アルカリガラス／アル カリガラス	0.8N/mm ²	1.0N/mm ²	NA	1.7N/mm ²
接着強度：ステンレススチール／ アルカリガラス	5.7N/mm ²	NA	5.5N/mm ²	7.8N/mm ²

NA：測定していない。

以上から明らかなように、光硬化樹脂成分に関して本発明の要旨を外れない限りにおいて、種々の変更が可能である。従って、ここに説明した形態は、例であって、特許請求の範囲に記載した本発明の範囲がこれに限定されるものでない。

産業上の利用可能性

本発明によれば、ガラス、特にアルカリガラス、または金属に対して、高い接着力を示す接着剤として使用できる光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物を提供することができる。特に、光カチオン開始剤として、 A^+B^- で表したときのアニオン B^- が、 SbF_6^- または $B(アリール)_4^-$ である塩を用いたときでも、十分な硬化速度を有しながら、アルカリガラスまたは金属に対して高い接着力を示す接着剤として使用できる。

請 求 の 範 囲

1. (a) 脂環式エポキシ樹脂と、芳香環を有するエポキシ樹脂とを含有するエポキシ樹脂成分、
(b) 光カチオン開始剤成分、および
(c) 元素の長周期表中の2族元素を含む酸化物、水酸化物および炭酸塩からなる群より選ばれる充填剤
を含有する光カチオン硬化型エポキシ樹脂組成物。
2. 前記 (b) 光カチオン開始剤が、 A^+B^- で表したときに、そのアニオン B^- が、 SbF_6^- または $B(\text{アリール})_4^-$ である塩を含むことを特徴とする請求項1記載の組成物。
3. 前記 (b) 光カチオン開始剤が、 A^+B^- で表され、そのアニオン B^- が、 SbF_6^- または $B(\text{アリール})_4^-$ である開始剤に加えて、アニオン B^- が SbF_6^- および $B(\text{アリール})_4^-$ 以外の開始剤を含むことを特徴とする請求項2記載の組成物。
4. 前記のアニオン B^- が SbF_6^- および $B(\text{アリール})_4^-$ 以外の開始剤が、アニオン B^- として PF_6^- 、 AsF_6^- および BF_4^- からなる群より選ばれるものを含む開始剤であることを特徴とする請求項3記載の組成物。
5. 前記 (c) 充填剤に含まれる2族元素が、マグネシウム、カルシウムおよびバリウムからなる群より選ばれる1種以上であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の組成物。
6. 前記 (c) 充填剤に含まれる2族元素が、マグネシウムであることを特徴とする請求項5記載の組成物。

7. 前記(c)充填剤が、 MgO 、 $Mg(OH)_2$ 、タルク、コージェライト、メタケイ酸マグネシウムおよびオルトケイ酸マグネシウムからなる群より選ばれる1種以上であることを特徴とする請求項6記載の組成物。

8. 前記芳香環を有するエポキシ樹脂が、ビスフェノール型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂およびビフェニル型エポキシ樹脂からなる群より選ばれる1種以上を含み、

脂環式エポキシ樹脂が、分子内にシクロヘキセンオキサイド構造またはシクロペンテンオキサイド構造を有する化合物から選ばれる1種以上を含むことを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の組成物。

9. 前記エポキシ樹脂成分が、実質的にフッ素化されていない樹脂からなることを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載の組成物。

10. アルカリガラスまたは金属の接着剤用途として用いられる請求項1～9のいずれかに記載の組成物。

Fig. 1

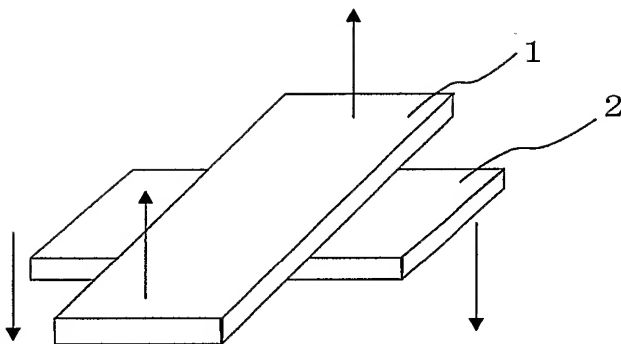
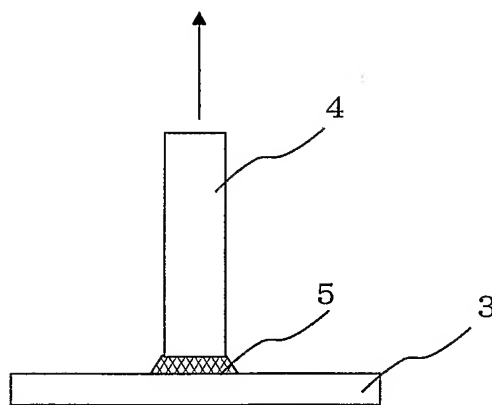


Fig. 2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/05691

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08L63/00, C08G59/68, C08K3/22, C08K3/26, C09J163/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L63/00-04, C08G59/68-72, C08K3/22, C08K3/26,
C09J163/00-04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-73159 A (KDD Kabushiki Kaisha), 15 March, 1994 (15.03.94), Claims (Family: none)	1-10
A	WO 98/47046 A1 (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING CO.), 22 October, 1998 (22.10.98), Claims & JP 2001-520758 A Claims & EP 968459 A1 & US 6025406 A & US 6043295 A	1-10

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
11 August, 2003 (11.08.03)

Date of mailing of the international search report
26 August, 2003 (26.08.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/05691

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 98/47047 A1 (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING CO.), 22 October, 1998 (22.10.98), Claims & JP 2001-520759 A Claims & EP 974078 A1 & US 6187833 B1	1-10
A	EP 702042 A1 (NEW JAPAN CHEMICAL CO., LTD.), 20 March, 1996 (20.03.96), Claims & JP 8-134178 A Claims & US 6218482 B1	1-10

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08L63/00, C08G59/68, C08K3/22, C08K3/26, C09J163/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08L63/00-04, C08G59/68-72, C08K3/22, C08K3/26, C09J163/00-04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 6-73159 A (日本電信電話株式会社) 1994. 03. 15, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-10
A	WO 98/47046 A1 (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 1998. 10. 22, クレーム & JP 2001-520758 A, 特許請求の範囲 & EP 968459 A1 & US 6025406 A & US 6043295 A	1-10
A	WO 98/47047 A1 (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 1998. 10. 22, クレーム & JP 2001-520759 A, 特許請求の範囲 & EP 974078 A1 & US 6187833 B1	1-10
A	EP 702042 A1 (NEW JAPAN CHEMICAL CO., LTD) 1996. 03. 20, クレーム & JP 8-134178 A, 特許請求の範囲 & US 6218482 B1	1-10

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

11. 08. 03

国際調査報告の発送日

26.08.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小林 均

4 J

8016

電話番号 03-3581-1101 内線 3455